

# 3

PATENT APPLICATION

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

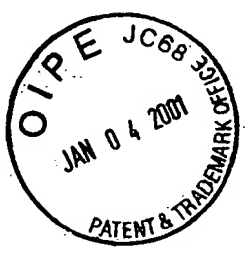
In re application of

Hitoshi ISHIKAWA, et al.

Appln. No.: 09/729,195

Filed: December 5, 2000

For: ORGANIC ELECTROLUMINESCENT DEVICE



Group Art Unit: Unknown

Examiner: Unknown

SUBMISSION OF PRIORITY DOCUMENTS

Assistant Commissioner for Patents  
Washington, D.C. 20231

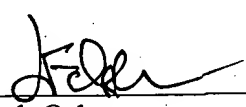
RECEIVED  
FEB 13 2001  
TC 1700

Sir:

Submitted herewith are certified copies of Japanese Patent Applications Nos. 356685/99, 356686/99, 2000-343560, and 2000-343561, the four priority documents on which claims to priority were made under 35 U.S.C. § 119. The Examiner is respectfully requested to acknowledge receipt of said priority documents.

Respectfully submitted,

SUGHRUE, MION, ZINN,  
MACPEAK & SEAS, PLLC  
2100 Pennsylvania Avenue, N.W.  
Washington, D.C. 20037-3213  
Telephone: (202) 293-7060  
Facsimile: (202) 293-7860

  
J. Frank Osha  
Registration No. 24,625

Enclosures: Japanese Patent Application No. 356685/99  
Japanese Patent Application No. 356686/99  
Japanese Patent Application No. 2000-343560  
Japanese Patent Application No. 2000-343561

Date: January 4, 2001

日本国特許庁  
PATENT OFFICE  
JAPANESE GOVERNMENT

tsukawa  
appn 09/729, 195  
Filed 12/5/00  
Q62115  
10f4

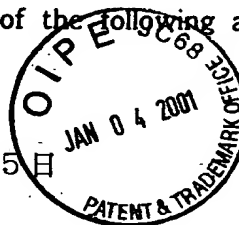
別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日

Date of Application:

1999年12月15日



出願番号

Application Number:

平成11年特許願第356685号

出願人

Applicant (s):

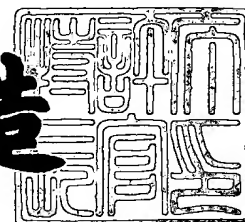
日本電気株式会社

RECEIVED  
FEB 13 2001  
TC 1700

2000年 9月22日

特許庁長官  
Commissioner,  
Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2000-3078341

【書類名】 特許願

【整理番号】 34601501

【提出日】 平成11年12月15日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 H05B 33/14  
H05B 33/22  
C09K 11/06

【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子

【請求項の数】 8

【発明者】

【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内

【氏名】 石川 仁志

【発明者】

【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内

【氏名】 東口 達

【発明者】

【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内

【氏名】 多田 宏

【発明者】

【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内

【氏名】 森岡 由紀子

【発明者】

【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内

【氏名】 小田 敦

【特許出願人】

【識別番号】 000004237

【氏名又は名称】 日本電気株式会社

【代理人】

【識別番号】 100108578

【弁理士】

【氏名又は名称】 高橋 詔男

【代理人】

【識別番号】 100064908

【弁理士】

【氏名又は名称】 志賀 正武

【選任した代理人】

【識別番号】 100101465

【弁理士】

【氏名又は名称】 青山 正和

【選任した代理人】

【識別番号】 100108453

【弁理士】

【氏名又は名称】 村山 靖彦

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 008707

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9709418

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

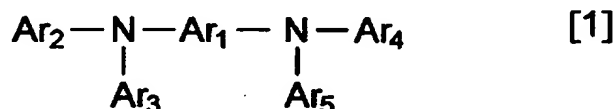
【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 陽極と陰極との間に一層または複数層の有機薄膜層を有し、この有機薄膜層が少なくとも発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、

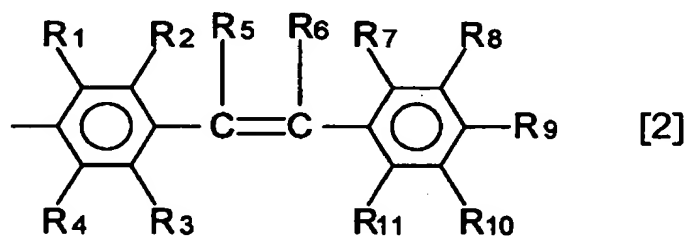
前記発光層が下記一般式〔1〕で表される化合物を単独もしくは混合物として含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化 1】



(式〔1〕中、 $\text{Ar}_1$  は炭素数 5 ～ 42 の置換もしくは無置換のアリーレン基であり、 $\text{Ar}_2 \sim \text{Ar}_5$  はそれぞれ独立に炭素数 6 ～ 20 の置換もしくは無置換のアリール基であり、 $\text{Ar}_2$  と  $\text{Ar}_3$  または  $\text{Ar}_4$  と  $\text{Ar}_5$  の 2 つの群のうち少なくとも一方は同時に下記一般式〔2〕で表される基をそれぞれ少なくとも一つ有する。また、 $\text{Ar}_2$  と  $\text{Ar}_3$ 、 $\text{Ar}_4$  と  $\text{Ar}_5$  は互いに環を形成してもよい。)

【化 2】



(式〔2〕中、 $\text{R}_1 \sim \text{R}_{11}$  はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、置換もしくは無置換のアミノ基、シアノ基、ニトロ基、置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のアルケニル基、置換もしくは無置換のシクロアルキル基、置換もしくは無置換のアルコキシ基、置換もしくは無置換の

芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、置換もしくは無置換のアラルキル基、置換もしくは無置換のアリールオキシ基、置換もしくは無置換のアルコシカルボニル基、カルボキシル基を表す。ただし、 $R_6$  は水素原子以外の置換基である。また、 $R_1 \sim R_{11}$  はそれらのうちの2つで環を形成してもよい。)

【請求項2】 前記有機薄膜層が少なくとも正孔輸送層を有し、この正孔輸送層が前記一般式〔1〕で表される化合物を単独もしくは混合物で含むことを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項3】 前記有機薄膜層が少なくとも電子輸送層を有し、この電子輸送層が前記一般式〔1〕で表される化合物を単独もしくは混合物で含むことを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

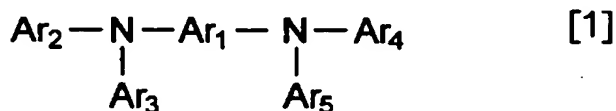
【請求項4】 前記一般式〔1〕において、 $R_6$  が炭素数6～20のアリール基であることを特徴とする請求項1ないし3のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項5】 前記一般式〔1〕において、 $R_6$  が置換もしくは無置換のアラルキル基またはシクロアルキル基であることを特徴とする請求項1ないし3のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項6】 少なくとも陽極、発光帯域、陰極を構成要素として持ち、発光帯域が一層または複数層の有機薄膜層から形成される有機エレクトロルミネッセンス素子において、

前記発光帯域が陽極に隣接し、前記発光帯域を形成する有機薄膜層のうちの陽極に接する層が、下記一般式〔1〕で示される化合物を単独もしくは混合物で含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

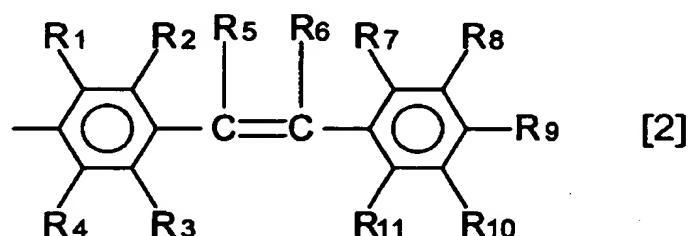
【化3】



(式〔1〕中、 $\text{Ar}_1$  は炭素数5～42の置換もしくは無置換のアリーレン基で

あり、 $Ar_2 \sim Ar_5$ はそれぞれ独立に炭素数 6 ～ 20 の置換もしくは無置換のアリール基であり、 $Ar_2$ と $Ar_3$ または $Ar_4$ と $Ar_5$ の 2 つの群のうち少なくとも一方は同時に下記一般式 [2] で表される基をそれぞれ少なくとも一つ有する。また、 $Ar_2$ と $Ar_3$ 、 $Ar_4$ と $Ar_5$ は互いに環を形成してもよい。)

【化 4】



(式 [2] 中、 $R_1 \sim R_{11}$ はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシ基、置換もしくは無置換のアミノ基、シアノ基、ニトロ基、置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のアルケニル基、置換もしくは無置換のシクロアルキル基、置換もしくは無置換のアルコキシ基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、置換もしくは無置換のアラルキル基、置換もしくは無置換のアリールオキシ基、置換もしくは無置換のアルコキシカルボニル基、カルボキシ基を表す。ただし、 $R_6$  は水素原子以外の置換基である。また、 $R_1 \sim R_{11}$ はそれらのうちの 2 つで環を形成してもよい。)

【請求項 7】 前記一般式 [1] において、 $R_6$  が炭素数 6 ～ 20 のアリール基であることを特徴とする請求項 6 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 8】 前記一般式 [1] において、 $R_6$  が置換もしくは無置換のアルキル基またはシクロアルキル基であることを特徴とする請求項 6 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、発光特性に優れた有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

## 【0002】

## 【従来の技術】

有機エレクトロルミネッセンス (EL) 素子は、電界を印加することにより、陽極より注入された正孔と陰極より注入された電子との再結合エネルギーにより蛍光性物質が発光する原理を利用した自発光素子である。

イーストマン・コダック社の C. W. Tang らによって積層型素子による低電圧駆動有機 EL 素子の報告 (C.W.Tang, S.A.VanSlyke, Applied Physics Letters, 51 巻, 913 頁, 1987 年など) がなされて以来、有機材料を構成材料とする有機 EL 素子に関する研究が盛んに行われている。Tang らは、トリス (8-ヒドロキシキノリノールアルミニウム) を発光層に、トリフェニルジアミン誘導体を正孔輸送層に用いている。積層構造の利点としては、発光層への正孔の注入効率を高めること、陰極より注入された電子をブロックして再結合により生成する励起子の生成効率を高めること、発光層内で生成した励起子を閉じこめることなどが挙げられる。

この例のように有機 EL 素子の素子構造としては、正孔輸送 (注入) 層、電子輸送性発光層の 2 層型、または正孔輸送 (注入) 層、発光層、電子輸送 (注入) 層の 3 層型等がよく知られている。こうした積層型構造素子では、注入された正孔と電子の再結合効率を高めるため、素子構造や形成方法の工夫がなされている。材料に関しても様々な化合物が有機エレクトロルミネッセンス素子用材料として開発されている。

## 【0003】

正孔輸送材料としてはスターバースト分子である 4, 4', 4''-トリス (3-メチルフェニルフェニルアミノ) トリフェニルアミンや N, N'-ジフェニル-N, N'-ビス (3-メチルフェニル) - [1, 1'-ビフェニル] - 4, 4'-ジアミン等のトリフェニルアミン誘導体や芳香族ジアミン誘導体がよく知られている (例えば、特開平 8-20771 号公報、特開平 8-40995 号公報、特開平 8-40997 号公報、公報特開平 8-53397 号公報、特開平 8-87122 号公報等)。

電子輸送性材料としてはオキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体等がよ



く知られている。

また、発光材料としてはトリス（8-キノリノラート）アルミニウム錯体等のキレート錯体、クマリン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、ビススチリルアリーレン誘導体、オキサジアゾール誘導体等の発光材料が知られ、それらの発光色も青色から赤色までの可視領域の発光が得られることが報告されており、カラー表示素子の実現が期待されている（例えば、特開平8-239655号公報、特開平7-138561号公報、特開平3-200289号公報等）。

#### 【0004】

##### 【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、上記化合物の他に有機エレクトロルミネッセンス素子の構成材料としてスチリル基を有するジフェニルアミノアリーレンが有用であることが開示されている（特開平11-74079号公報、特開平11-185961号公報等）が、ジフェニルアミノ基の二つのフェニル基とともにスチリル基が存在する場合、EL素子の発光特性の低下、寿命特性の低下が起こることが今回明らかとなった。

#### 【0005】

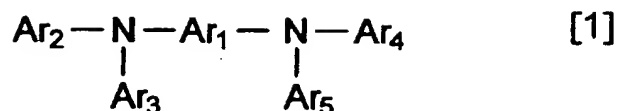
##### 【課題を解決するための手段】

本発明者らは前記課題を解決するために鋭意検討した結果、スチリル基の $\beta$ 位に置換基を有するジスチリルジフェニルアミノアリーレン化合物を有機EL素子の構成材料とすることにより、発光特性の低下、寿命特性の低下が起こらないことを見出した。

従って本発明は、下記①～④の有機エレクトロルミネッセンス素子を提供するものである。

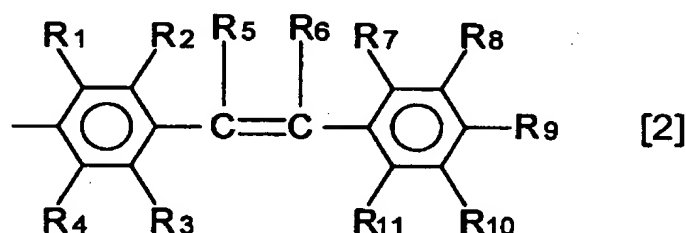
①陽極と陰極との間に一層または複数層の有機薄膜層を有し、この有機薄膜層が少なくとも発光層を有する有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記発光層が下記一般式〔1〕で表される化合物を単独もしくは混合物として含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【化5】



(式[1]中、 $\text{Ar}_1$ は炭素数5～42の置換もしくは無置換のアリーレン基であり、 $\text{Ar}_2 \sim \text{Ar}_5$ はそれぞれ独立に炭素数6～20の置換もしくは無置換のアリール基であり、 $\text{Ar}_2$ と $\text{Ar}_3$ または $\text{Ar}_4$ と $\text{Ar}_5$ の2つの群のうち少なくとも一方は同時に下記一般式[2]で表される基をそれぞれ少なくとも一つ有する。また、 $\text{Ar}_2$ と $\text{Ar}_3$ 、 $\text{Ar}_4$ と $\text{Ar}_5$ は互いに環を形成してもよい。)

【化6】



(式[2]中、 $\text{R}_1 \sim \text{R}_{11}$ はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシ基、置換もしくは無置換のアミノ基、シアノ基、ニトロ基、置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のアルケニル基、置換もしくは無置換のシクロアルキル基、置換もしくは無置換のアルコキシ基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、置換もしくは無置換のアラルキル基、置換もしくは無置換のアリールオキシ基、置換もしくは無置換のアルコキシカルボニル基、カルボキシ基を表す。ただし、 $\text{R}_6$ は水素原子以外の置換基である。また、 $\text{R}_1 \sim \text{R}_{11}$ はそれらのうちの2つで環を形成してもよい。)

②前記有機薄膜層が少なくとも正孔輸送層を有し、この正孔輸送層が前記一般式[1]で表される化合物を単独もしくは混合物で含むことを特徴とする①に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

③前記有機薄膜層が少なくとも電子輸送層を有し、この電子輸送層が前記一般式〔1〕で表される化合物を単独もしくは混合物で含むことを特徴とする①に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

④前記一般式〔1〕において、 $R_6$  が炭素数6～20のアリール基であることを特徴とする①、②、③のいずれかの有機エレクトロルミネッセンス素子。

⑤前記一般式〔1〕において、 $R_6$  が置換もしくは無置換のアルキル基またはシクロアルキル基であることを特徴とする①、②、③のいずれかに記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

⑥少なくとも陽極、発光帯域、陰極を構成要素として持ち、発光帯域が一層または複数層の有機薄膜層から形成される有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記発光帯域が陽極に隣接し、前記発光帯域を形成する有機薄膜層のうちの陽極に接する層が、前記一般式〔1〕で示される化合物を単独もしくは混合物で含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

⑦前記一般式〔1〕において、 $R_6$  が炭素数6～20のアリール基であることを特徴とする請求項6に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

⑧前記一般式〔1〕において、 $R_6$  が置換もしくは無置換のアルキル基またはシクロアルキル基であることを特徴とする請求項6に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【0006】

#### 【発明の実施の形態】

以下、本発明を詳細に説明する。

本発明で用いられる化合物は、一般式〔1〕で表される構造を有する化合物であり、 $Ar_2$ と $Ar_3$ または $Ar_4$ と $Ar_5$ の2つの群のうち少なくとも一方は同時に下記一般式〔2〕で表される基をそれぞれ少なくとも一つ有する。上記一般式〔1〕において、 $Ar_1$ に用いられる化合物は炭素数5～42の置換もしくは無置換のアリーレン基を示す。

このような化合物の例としては、ナフチル基、アントラニル基、ペリレニレン基、1：2ベンゾペリレニレン基、1：2：7：8ジベンゾペリレニレン基、1：2：11：12ジベンゾペリレニレン基、テリレニレン基、ペンタセニレン基

、ビスアンスレニレン基、10, 10'-(9, 9'-ビアンスリル)イレン基、4, 4'-(1, 1'-ビナフチル)イレン基、4, 10'-(1, 9'-ナフチルアンスリル)イレン基、一般式〔3〕で表される2価基、

【化7】



(ただし式〔3〕中、 $\text{Ar}_6 \sim \text{Ar}_8$ はそれぞれナフチル基またはアントラニル基のいずれかである。) およびフェナントレン、ピレン、ビフェニル、ターフェニル等の芳香族炭化水素あるいは縮合多環式炭化水素、カルバゾール、ピロール、チオフェン、フラン、イミダゾール、ピラゾール、イソチアゾール、イソオキサゾール、ピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、フラザン、チアンスレン、イソベンゾフラン、フェノキサジン、インドリジン、インドール、イソインドール、1H-インダゾール、プリン、キノリン、イソキノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジン、カルバゾール、 $\beta$ -カルバゾリン、フェナンスリジン、アクリジン、ペリミジン、フェナントロリン、フェナジン、フェノチアジン、フェノキサジン等の複素環化合物あるいは縮合複素環化合物の水素原子を2個除いた二価の基およびそれらの誘導体が挙げられる。

【0007】

$\text{Ar}_2 \sim \text{Ar}_5$ は、それぞれ独立に置換もしくは無置換の炭素数6～20のアリール基である。さらに、 $\text{Ar}_2$ と $\text{Ar}_3$ または $\text{Ar}_4$ と $\text{Ar}_5$ の2つの群のうち少なくとも一方は同時に一般式〔2〕で表される基をそれぞれ少なくとも一つ有する。具体的には、 $\text{Ar}_2$ と $\text{Ar}_3$ が同時に一般式〔2〕で表される基をそれぞれ少なくとも一つ有する場合、 $\text{Ar}_4$ と $\text{Ar}_5$ が同時に一般式〔2〕で表される基をそれぞれ少なくとも一つ有する場合、または、 $\text{Ar}_2$ 、 $\text{Ar}_3$ 、 $\text{Ar}_4$ 、 $\text{Ar}_5$ がすべて同時に一般式〔2〕で表される基をそれぞれ少なくとも一つ有する場合が挙げられる。

炭素数 6～20 のアリール基の例としては、フェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナントリル基、ナфтаセニル基、ピレニル基等が挙げられる。

ここに置換基の例として、置換もしくは無置換のアルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*s*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1, 2-ジブロモエチル基、1, 3-ジブロモイソプロピル基、2, 3-ジブromo-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリブromoプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、2, 3-ジニトロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基等が挙げられる。

【0008】

置換もしくは無置換のアルケニル基としては、ビニル基、アリル基、1-ブテニル基、2-ブテニル基、3-ブテニル基、1, 3-ブタンジエニル基、1-メ

チルビニル基、スチリル基、2, 2-ジフェニルビニル基、1, 2-ジフェニルビニル基、1-メチルアリル基、1, 1-ジメチルアリル基、2-メチルアリル基、1-フェニルアリル基、2-フェニルアリル基、3-フェニルアリル基、3, 3-ジフェニルアリル基、1, 2-ジメチルアリル基、1-フェニル-1-ブテニル基、3-フェニル-1-ブテニル基等が挙げられる。

置換もしくは無置換のシクロアルキル基としては、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、4-メチルシクロヘキシル基等が挙げられる。

置換もしくは無置換のアルコキシ基は、-OYで表される基であり、Yとしては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、s-ブチル基、イソブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、n-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1, 2-ジブロモエチル基、1, 3-ジブロモイソプロピル基、2, 3-ジブロモ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード-t-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノ-t-ブチル基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基

、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、2, 3-ジニトロ-tert-ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基等が挙げられる。

## 【0009】

置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基の例としては、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-tert-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4''-tert-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基等が挙げられる。

## 【0010】

また、置換もしくは無置換の芳香族複素環基としては1-ピロリル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、1-インドリル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、2-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基

、 4 - キノリル基、 5 - キノリル基、 6 - キノリル基、 7 - キノリル基、 8 - キノリル基、 1 - イソキノリル基、 3 - イソキノリル基、 4 - イソキノリル基、 5 - イソキノリル基、 6 - イソキノリル基、 7 - イソキノリル基、 8 - イソキノリル基、 2 - キノキサリニル基、 5 - キノキサリニル基、 6 - キノキサリニル基、 1 - カルバゾリル基、 2 - カルバゾリル基、 3 - カルバゾリル基、 4 - カルバゾリル基、 9 - カルバゾリル基、 1 - フェナンスリジニル基、 2 - フェナンスリジニル基、 3 - フェナンスリジニル基、 4 - フェナンスリジニル基、 6 - フェナンスリジニル基、 7 - フェナンスリジニル基、 8 - フェナンスリジニル基、 9 - フェナンスリジニル基、 10 - フェナンスリジニル基、 1 - アクリジニル基、 2 - アクリジニル基、 3 - アクリジニル基、 4 - アクリジニル基、 9 - アクリジニル基、

【 0 0 1 1 】

1, 7 - フェナンスロリン - 2 - イル基、 1, 7 - フェナンスロリン - 3 - イル基、 1, 7 - フェナンスロリン - 4 - イル基、 1, 7 - フェナンスロリン - 5 - イル基、 1, 7 - フェナンスロリン - 6 - イル基、 1, 7 - フェナンスロリン - 8 - イル基、 1, 7 - フェナンスロリン - 9 - イル基、 1, 7 - フェナンスロリン - 10 - イル基、 1, 8 - フェナンスロリン - 2 - イル基、 1, 8 - フェナンスロリン - 3 - イル基、 1, 8 - フェナンスロリン - 4 - イル基、 1, 8 - フェナンスロリン - 5 - イル基、 1, 8 - フェナンスロリン - 6 - イル基、 1, 8 - フェナンスロリン - 7 - イル基、 1, 8 - フェナンスロリン - 9 - イル基、 1, 8 - フェナンスロリン - 10 - イル基、 1, 9 - フェナンスロリン - 2 - イル基、 1, 9 - フェナンスロリン - 3 - イル基、 1, 9 - フェナンスロリン - 4 - イル基、 1, 9 - フェナンスロリン - 5 - イル基、 1, 9 - フェナンスロリン - 6 - イル基、 1, 9 - フェナンスロリン - 7 - イル基、 1, 9 - フェナンスロリン - 8 - イル基、 1, 9 - フェナンスロリン - 10 - イル基、 1, 10 - フェナンスロリン - 2 - イル基、 1, 10 - フェナンスロリン - 3 - イル基、 1, 10 - フェナンスロリン - 4 - イル基、 1, 10 - フェナンスロリン - 5 - イル基、 2, 9 - フェナンスロリン - 1 - イル基、 2, 9 - フェナンスロリン - 3 - イル基、 2, 9 - フェナンスロリン - 4 - イル基、 2, 9 - フェナンスロリン - 5 -



イル基、2, 9-フェナンスロリン-6-イル基、2, 9-フェナンスロリン-7-イル基、2, 9-フェナンスロリン-8-イル基、2, 9-フェナンスロリン-10-イル基、2, 8-フェナンスロリン-1-イル基、2, 8-フェナンスロリン-3-イル基、2, 8-フェナンスロリン-4-イル基、2, 8-フェナンスロリン-5-イル基、2, 8-フェナンスロリン-6-イル基、2, 8-フェナンスロリン-7-イル基、2, 8-フェナンスロリン-9-イル基、2, 8-フェナンスロリン-10-イル基、2, 7-フェナンスロリン-1-イル基、2, 7-フェナンスロリン-3-イル基、2, 7-フェナンスロリン-4-イル基、2, 7-フェナンスロリン-5-イル基、2, 7-フェナンスロリン-6-イル基、2, 7-フェナンスロリン-8-イル基、2, 7-フェナンスロリン-9-イル基、2, 7-フェナンスロリン-10-イル基、

【0012】

1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、10-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基、10-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オキサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2-ｵｰﾌﾞﾁﾙﾋﾟﾛｰﾙ-4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-ｵｰﾌﾞﾁﾙ1-インドリル基、4-ｵｰﾌﾞﾁﾙ1-インドリル基、2-ｵｰﾌﾞﾁﾙ3-インドリル基、4-ｵｰﾌﾞﾁﾙ3-インドリル基、等が挙げられる。

【0013】

置換もしくは無置換のアラルキル基としては、ベンジル基、1-フェニルエチ

ル基、2-フェニルエチル基、1-フェニルイソプロピル基、2-フェニルイソプロピル基、フェニル-*t*-ブチル基、 $\alpha$ -ナフチルメチル基、1- $\alpha$ -ナフチルエチル基、2- $\alpha$ -ナフチルエチル基、1- $\alpha$ -ナフチルイソプロピル基、2- $\alpha$ -ナフチルイソプロピル基、 $\beta$ -ナフチルメチル基、1- $\beta$ -ナフチルエチル基、2- $\beta$ -ナフチルエチル基、1- $\beta$ -ナフチルイソプロピル基、2- $\beta$ -ナフチルイソプロピル基、1-ピロリルメチル基、2-(1-ピロリル)エチル基、*p*-メチルベンジル基、*m*-メチルベンジル基、*o*-メチルベンジル基、*p*-クロロベンジル基、*m*-クロロベンジル基、*o*-クロロベンジル基、*p*-ブロモベンジル基、*m*-ブロモベンジル基、*o*-ブロモベンジル基、*p*-ヨードベンジル基、*m*-ヨードベンジル基、*o*-ヨードベンジル基、*p*-ヒドロキシベンジル基、*m*-ヒドロキシベンジル基、*o*-ヒドロキシベンジル基、*p*-アミノベンジル基、*m*-アミノベンジル基、*o*-アミノベンジル基、*p*-ニトロベンジル基、*m*-ニトロベンジル基、*o*-ニトロベンジル基、*p*-シアノベンジル基、*m*-シアノベンジル基、*o*-シアノベンジル基、1-ヒドロキシ-2-フェニルイソプロピル基、1-クロロ-2-フェニルイソプロピル基等が挙げられる。

## 【0014】

置換もしくは無置換のアリールオキシ基は、-OZと表され、Zとしてはフェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、*p*-ターフェニル-4-イル基、*p*-ターフェニル-3-イル基、*p*-ターフェニル-2-イル基、*m*-ターフェニル-4-イル基、*m*-ターフェニル-3-イル基、*m*-ターフェニル-2-イル基、*o*-トリル基、*m*-トリル基、*p*-トリル基、*p*-*t*-ブチルフェニル基、*p*-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4'-*t*-ブチル-*p*-ターフェニル-4-イル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジ

ニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、2-インド  
 リル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インド  
 リル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4  
 -イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソ  
 インドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベン  
 ゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラ  
 ニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフ  
 ラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベ  
 ンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基  
 、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キ  
 ノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5  
 -イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリ  
 ル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、  
 1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾ  
 リル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナン  
 スリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フ  
 ェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、  
 10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-  
 アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、

## 【0015】

1, 7-フェナンスロリン-2-イル基、1, 7-フェナンスロリン-3-イ  
 ル基、1, 7-フェナンスロリン-4-イル基、1, 7-フェナンスロリン-5  
 -イル基、1, 7-フェナンスロリン-6-イル基、1, 7-フェナンスロリン  
 -8-イル基、1, 7-フェナンスロリン-9-イル基、1, 7-フェナンスロ  
 リン-10-イル基、1, 8-フェナンスロリン-2-イル基、1, 8-フェナ  
 ンスロリン-3-イル基、1, 8-フェナンスロリン-4-イル基、1, 8-フ  
 ェナンスロリン-5-イル基、1, 8-フェナンスロリン-6-イル基、1, 8  
 -フェナンスロリン-7-イル基、1, 8-フェナンスロリン-9-イル基、1  
 , 8-フェナンスロリン-10-イル基、1, 9-フェナンスロリン-2-イル

基、1, 9-フェナンスロリン-3-イル基、1, 9-フェナンスロリン-4-イル基、1, 9-フェナンスロリン-5-イル基、1, 9-フェナンスロリン-6-イル基、1, 9-フェナンスロリン-7-イル基、1, 9-フェナンスロリン-8-イル基、1, 9-フェナンスロリン-10-イル基、1, 10-フェナンスロリン-2-イル基、1, 10-フェナンスロリン-3-イル基、1, 10-フェナンスロリン-4-イル基、1, 10-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-1-イル基、2, 9-フェナンスロリン-3-イル基、2, 9-フェナンスロリン-4-イル基、2, 9-フェナンスロリン-5-イル基、2, 9-フェナンスロリン-6-イル基、2, 9-フェナンスロリン-7-イル基、2, 9-フェナンスロリン-8-イル基、2, 9-フェナンスロリン-10-イル基、2, 8-フェナンスロリン-1-イル基、2, 8-フェナンスロリン-3-イル基、2, 8-フェナンスロリン-4-イル基、2, 8-フェナンスロリン-5-イル基、2, 8-フェナンスロリン-6-イル基、2, 8-フェナンスロリン-7-イル基、2, 8-フェナンスロリン-9-イル基、2, 8-フェナンスロリン-10-イル基、2, 7-フェナンスロリン-1-イル基、2, 7-フェナンスロリン-3-イル基、2, 7-フェナンスロリン-4-イル基、2, 7-フェナンスロリン-5-イル基、2, 7-フェナンスロリン-6-イル基、2, 7-フェナンスロリン-8-イル基、2, 7-フェナンスロリン-9-イル基、2, 7-フェナンスロリン-10-イル基、

【0016】

1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、1-フェノチアジニル基、2-フェノチアジニル基、3-フェノチアジニル基、4-フェノチアジニル基、1-フェノキサジニル基、2-フェノキサジニル基、3-フェノキサジニル基、4-フェノキサジニル基、2-オキサゾリル基、4-オキサゾリル基、5-オキサゾリル基、2-オキサジアゾリル基、5-オキサジアゾリル基、3-フラザニル基、2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、

2-*t*-ブチルピロール-4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-*t*-ブチル1-インドリル基、4-*t*-ブチル1-インドリル基、2-*t*-ブチル3-インドリル基、4-*t*-ブチル3-インドリル基等が挙げられる。

【0017】

置換もしくは無置換のアルコキシカルボニル基は-COOYと表され、Yとしてはメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*s*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1, 2-ジブロモエチル基、1, 3-ジブロモイソプロピル基、2, 3-ジブromo-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリブromoプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、2, 3-ジニトロ-*t*

ーブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基等が挙げられる。

【0018】

また、環を形成する2価基の例としては、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、ジフェニルメタン-2, 2'-ジイル基、ジフェニルエタン-3, 3'-ジイル基、ジフェニルプロパン-4, 4'-ジイル基等が挙げられる。

置換もしくは無置換のアミノ基は $-NX_1X_2$ と表され、 $X_1$ 、 $X_2$ としてはそれぞれ独立に、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*s*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1, 2-ジブロモエチル基、1, 3-ジブロモイソプロピル基、2, 3-ジブロモ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、

2, 3-ジニトロ-*t*-ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基等が挙げられる。

【0019】

$R_1 \sim R_{11}$  はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシ基、置換もしくは無置換のアミノ基、シアノ基、ニトロ基、置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のアルケニル基、置換もしくは無置換のシクロアルキル基、置換もしくは無置換のアルコキシ基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、置換もしくは無置換のアラルキル基、置換もしくは無置換のアリールオキシ基、置換もしくは無置換のアルコシカルボニル基、カルボキシ基を表すが、それらの具体例は上記置換基が挙げられる。また、 $R_1 \sim R_{11}$  はそれらのうちの2つで環を形成してもよいがそのような置換基の例としては上記置換基が挙げられる。

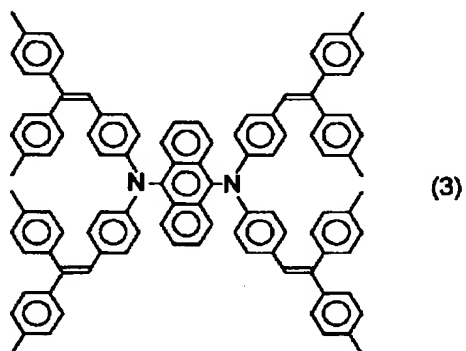
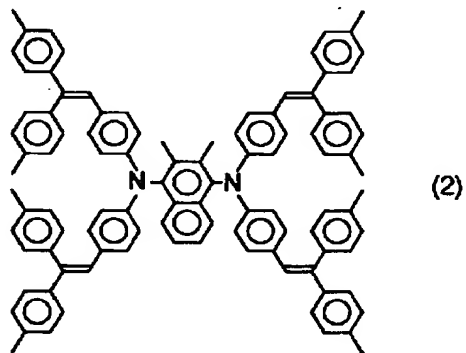
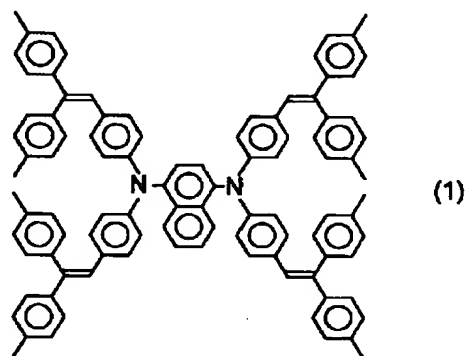
$R_6$  は水素原子ではなく、好ましくは置換もしくは無置換のアルキル基もしくはシクロアルキル基であり、その例としては、上記の置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のシクロアルキル基が挙げられる。または、 $R_6$  は炭素数6～20のアリール基であることが好ましい。

【0020】

以下に本発明で用いられる一般式〔1〕で表される化合物例として化合物(1)～(30)を挙げるが、本発明においてはその要旨を越えない限りこれらに限定されるものではない。

【0021】

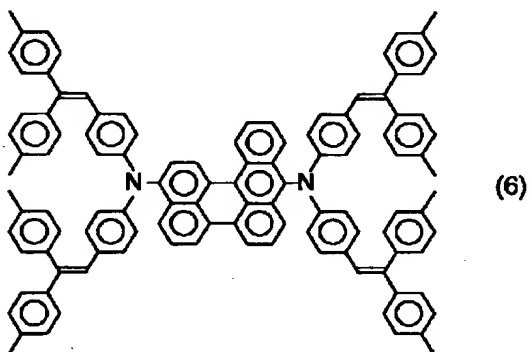
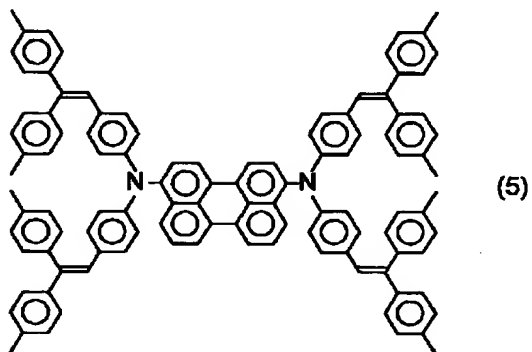
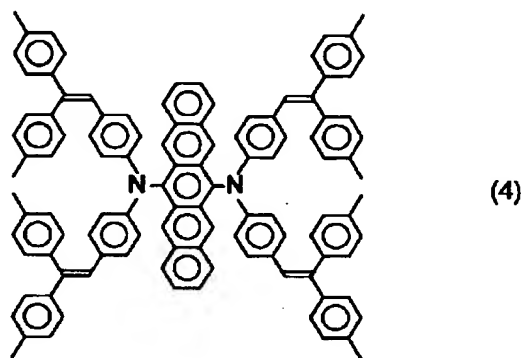
【化 8】



【0 0 2 2】

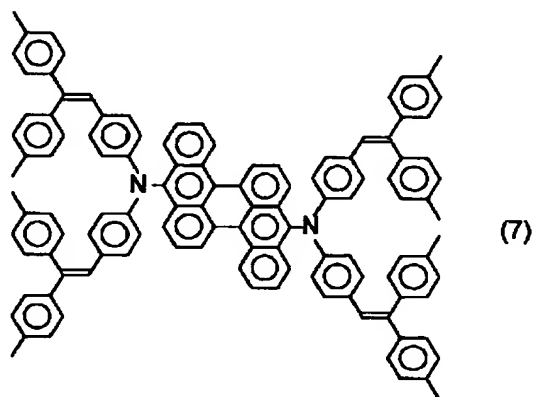


【化 9】

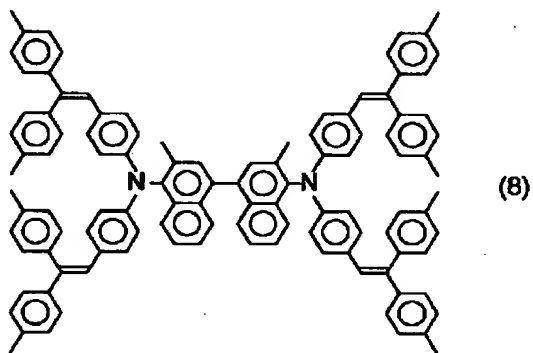


【0 0 2 3】

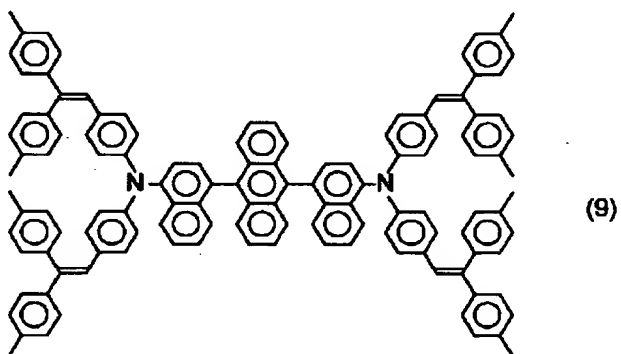
【化 1 0】



(7)



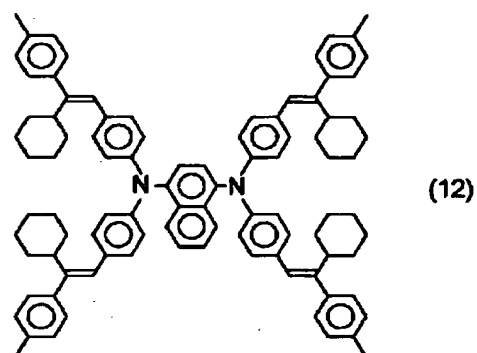
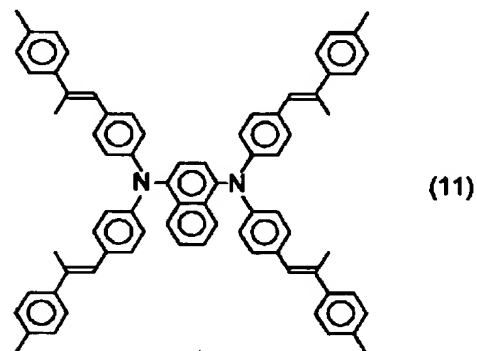
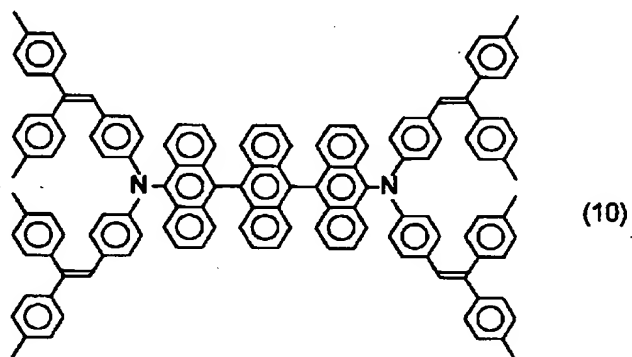
(8)



(9)

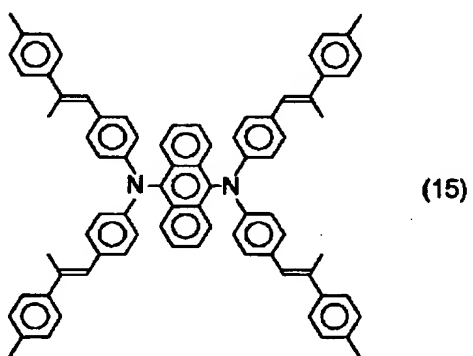
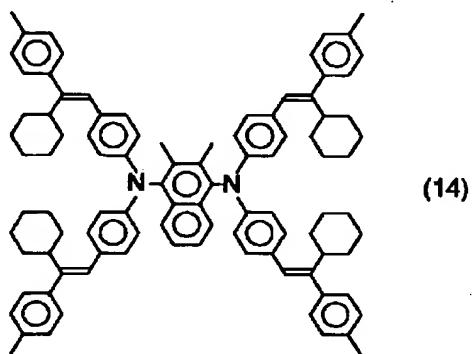
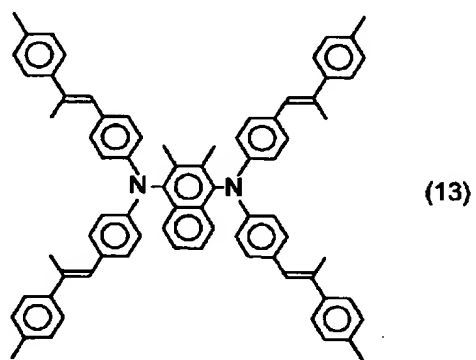
【0 0 2 4】

【化 1 1】



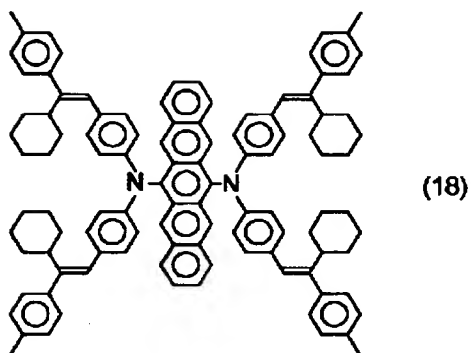
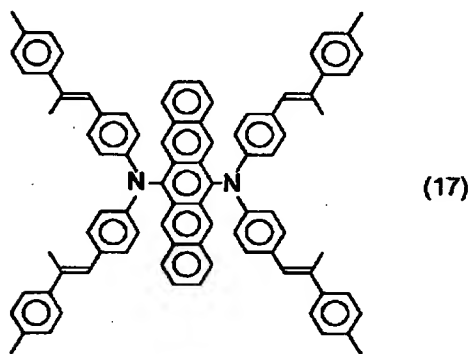
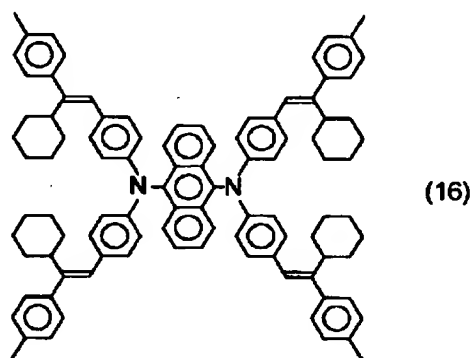
【0 0 2 5】

【化 1 2】



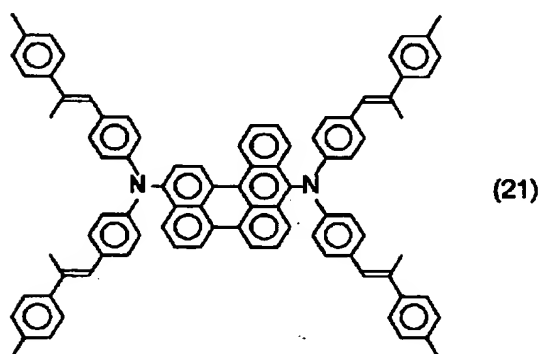
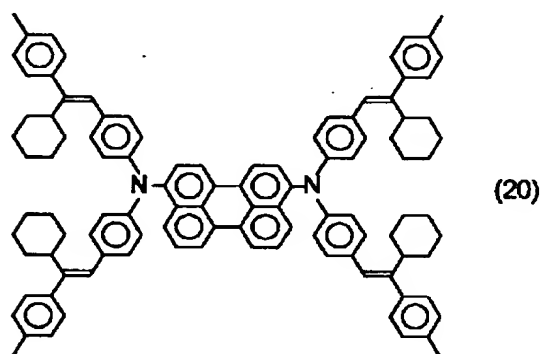
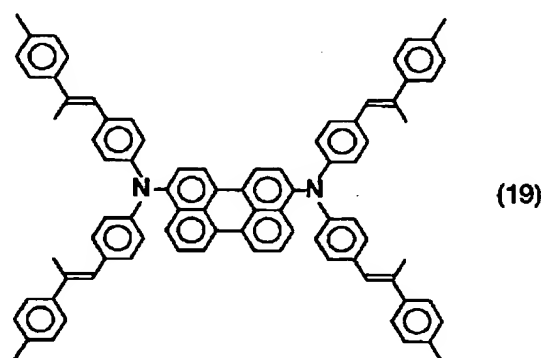
【 0 0 2 6 】

【化 1 3】



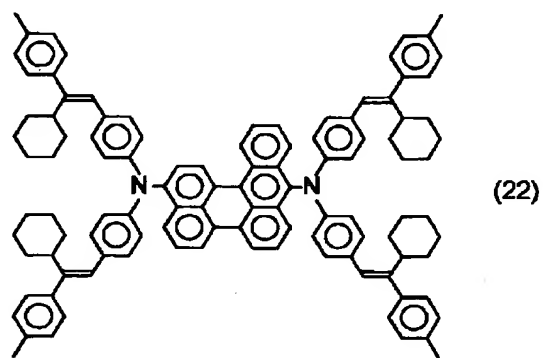
【0 0 2 7】

【化 1 4】

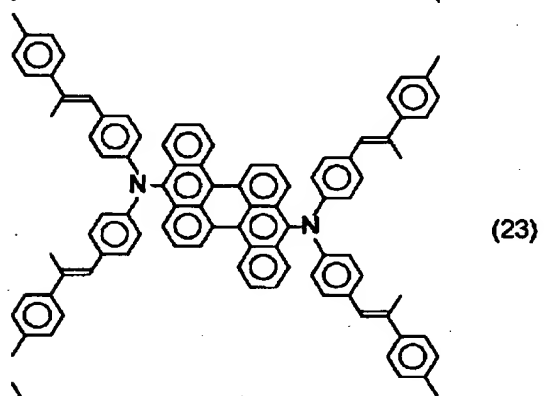


【0 0 2 8】

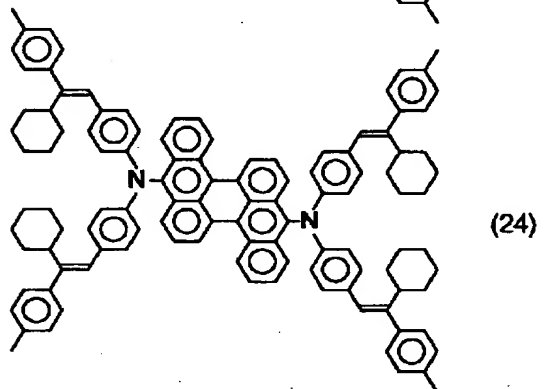
【化 1 5】



(22)



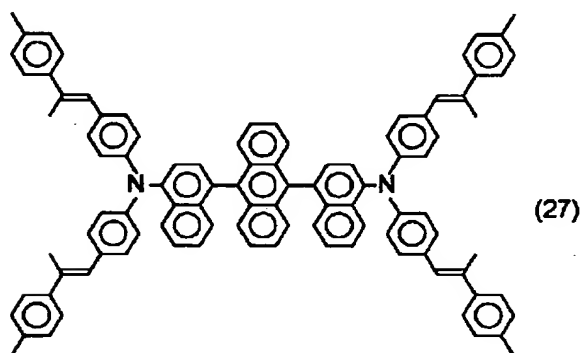
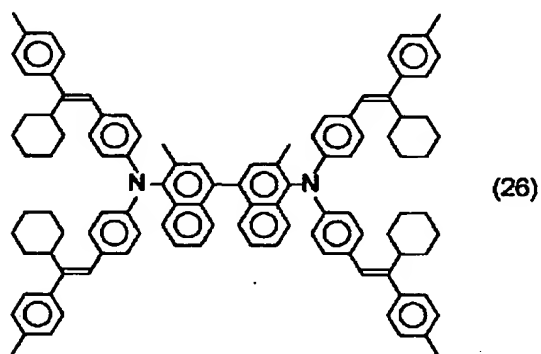
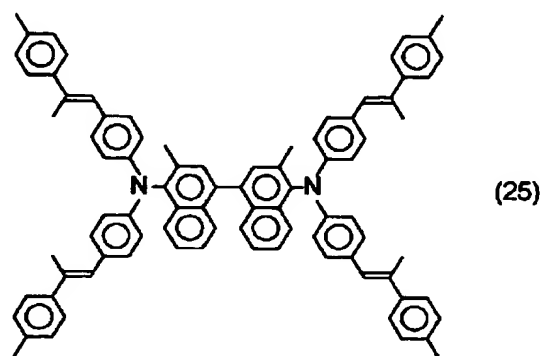
(23)



(24)

【0 0 2 9】

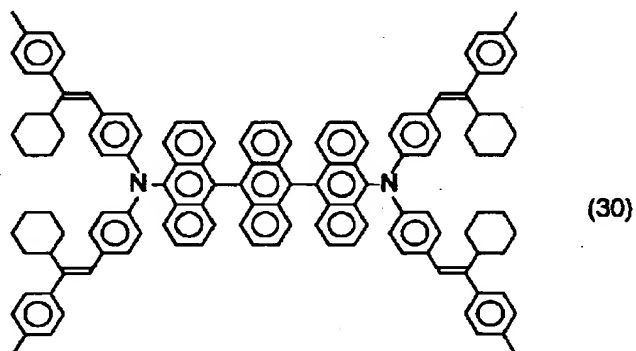
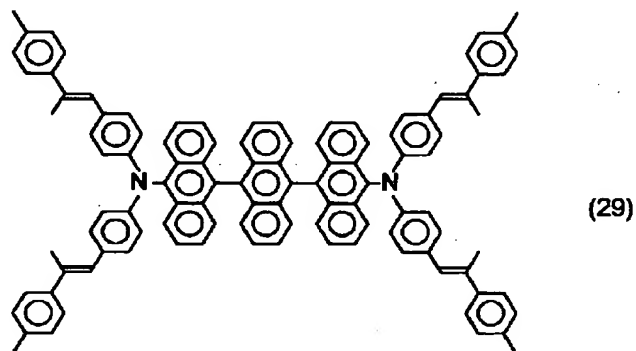
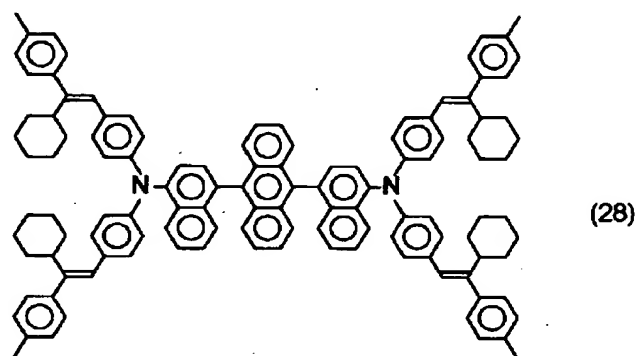
【化 1 6】



【 0 0 3 0 】



【化 1 7】



【0 0 3 1】

本発明の有機EL素子の素子構造は、電極間に有機薄膜層を1層あるいは2層以上積層した構造であり、その例として、図1に示すような①陽極、発光層、陰極、図2に示すような②陽極、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、陰極、図3に示すような③陽極、正孔輸送層、発光層、陰極、あるいは図4に示すような④陽極、発光層、電子輸送層、陰極等の構造が挙げられる。

本発明で用いられる一般式〔1〕で表される化合物は、上記のどの有機薄膜層に用いられてもよく、他の正孔輸送材料、発光材料、電子輸送材料にドーピングさせることも可能である。

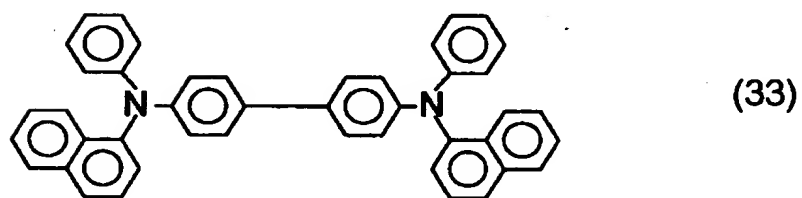
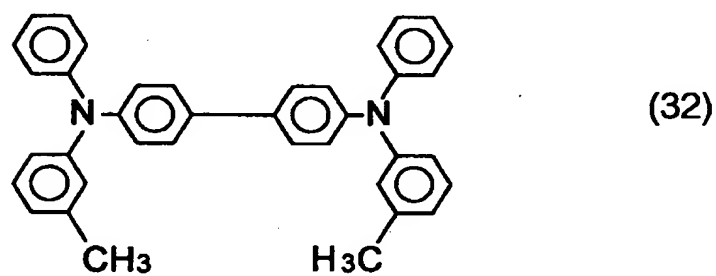
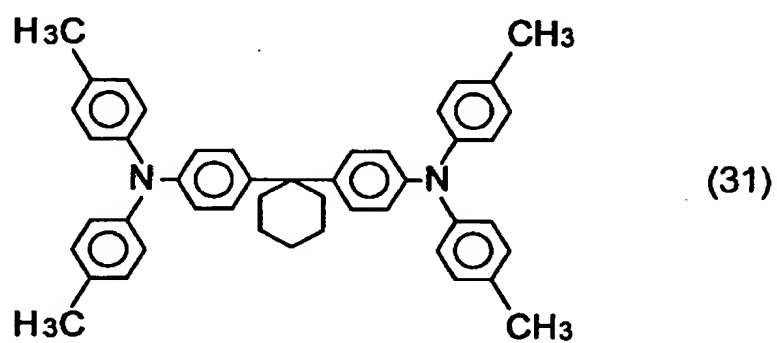
## 【 0 0 3 2 】

本発明に用いられる正孔輸送材料は特に限定されず、通常正孔輸送剤として使用されている化合物であれば何を使用してもよい。

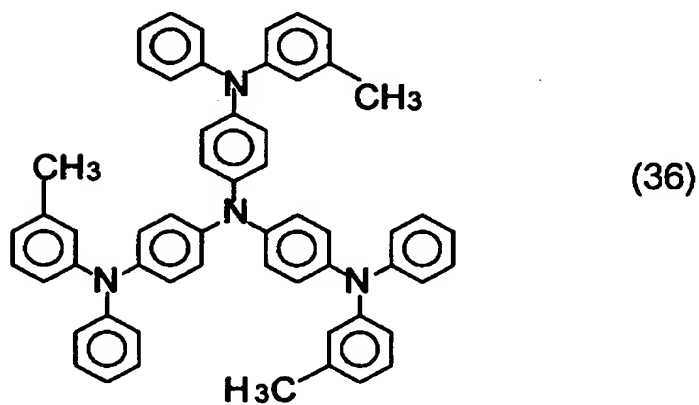
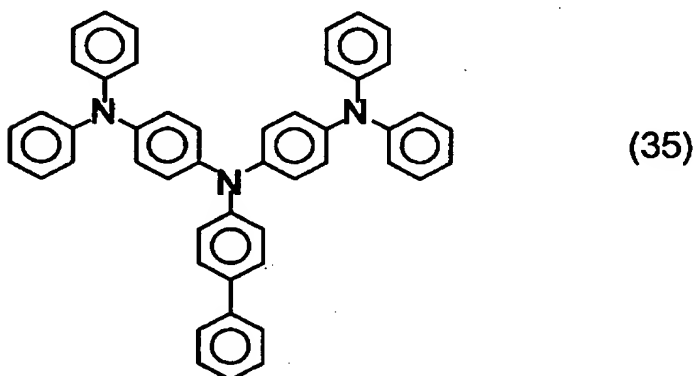
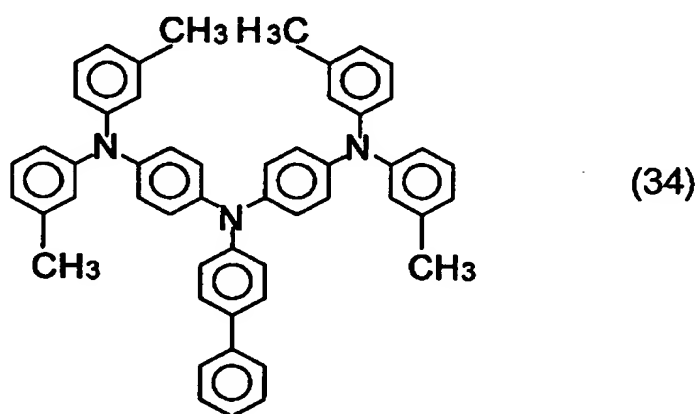
例えば、下記のビス（ジ（p-トリル）アミノフェニル）-1, 1-シクロヘキサン（31）、N, N'-ジフェニル-N, N'-ビス（3-メチルフェニル）-1, 1'-ビフェニル-4, 4'-ジアミン（32）、N, N'-ジフェニル-N-N'-ビス（1-ナフチル）-1, 1'-ビフェニル-4, 4'-ジアミン（33）等のトリフェニルジアミン類や、スターバースト型分子（（34）～（36）等）等が挙げられる。

## 【 0 0 3 3 】

【化 1 8】



【化 1 9】

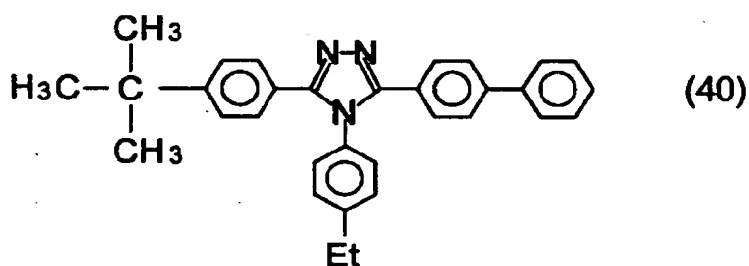
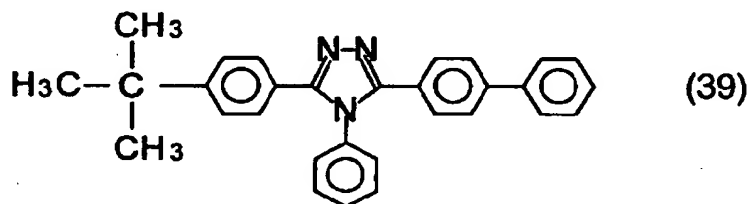
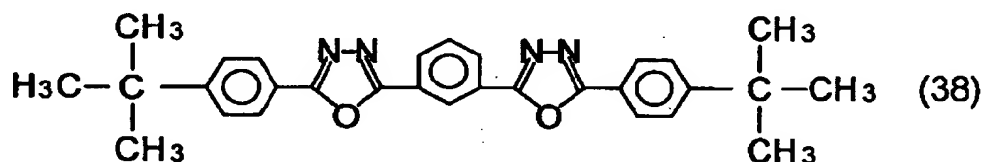
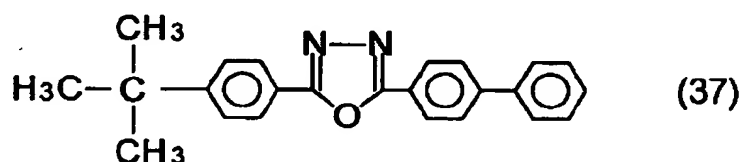


【 0 0 3 4 】

本発明に用いられる電子輸送材料は特に限定されず、通常電子輸送材として使用されている化合物であれば何を使用してもよい。

例えば、2-(4-ビフェニリル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール(37)、ビス{2-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール}-m-フェニレン(38)、等のオキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体((39)、(40)等)、が挙げられる。

【化20】



また一般式[4]、[5]、[6]に示される様なキノリノール系の金属錯体も挙げられる。

【化21】



(ただし式[4]中、Qは置換または未置換のヒドロキシキノリン誘導体、置換

もしくは未置換のベンゾキノリン誘導体でMは金属原子、nはその価数を表す)

。

【化 2 2】



(ただし式 [5] 中、Qは置換または未置換のヒドロキシキノリン誘導体、置換もしくは未置換のベンゾキノリン誘導体を表し、Lはハロゲン原子、置換もしくは未置換のアルキル基、置換もしくは未置換のシクロアルキル基、置換もしくは未置換の窒素原子を含んでもよいアリアル基を表し、Mは金属原子、nはその価数を表す)。

【化 2 3】

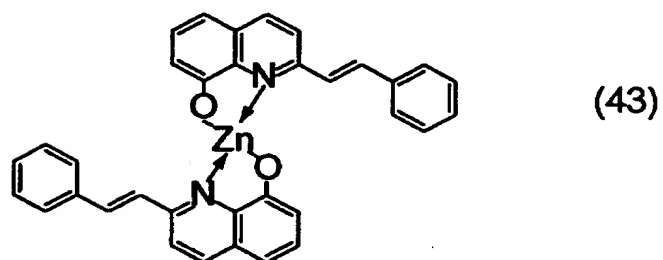
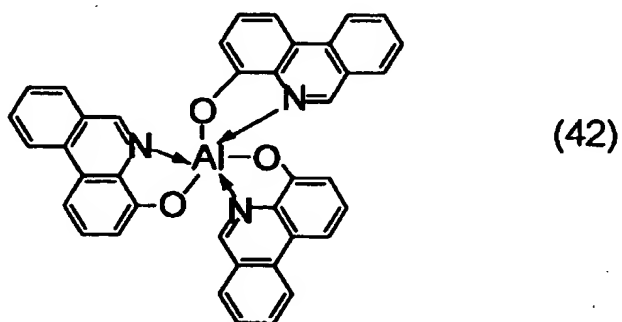
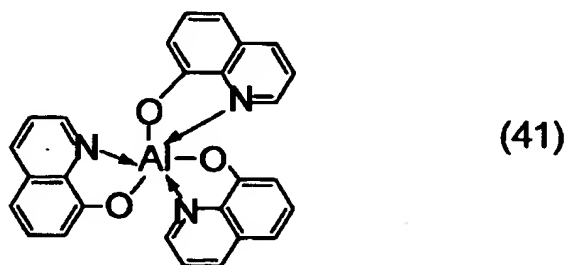


(ただし式 [6] 中、Qは置換または未置換のヒドロキシキノリン誘導体、置換もしくは未置換のベンゾキノリン誘導体を表し、Mは金属原子、nはその価数を表す)。

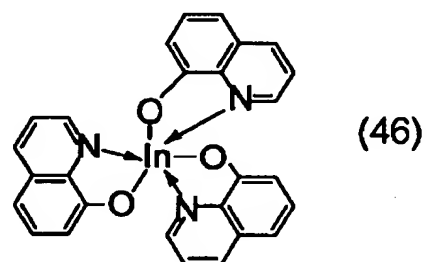
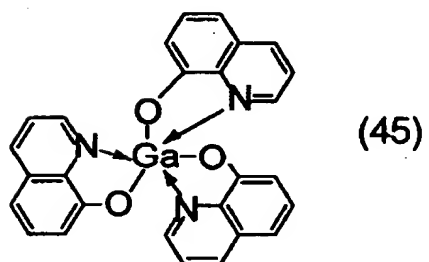
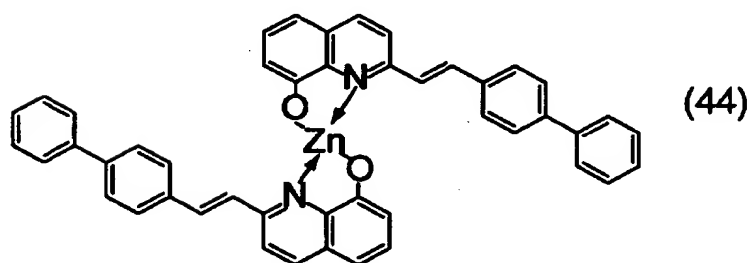
【0 0 3 5】

一般式 [4] の具体例としては次に化合物 (4 1) ~ (4 6) が挙げられる。

【化 2 4】



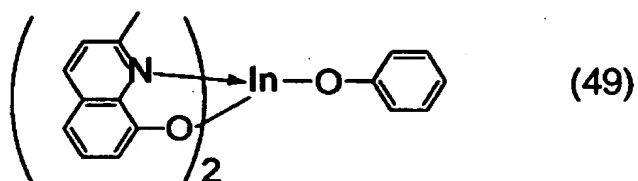
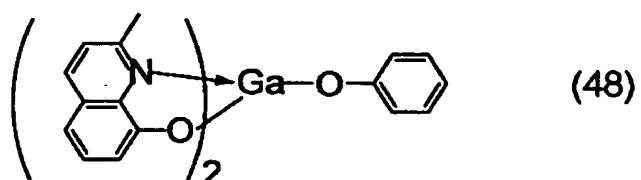
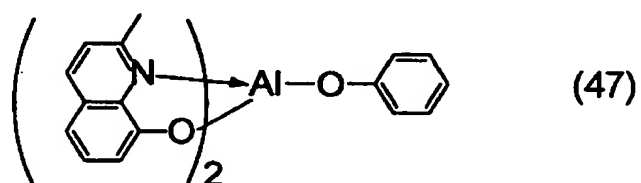
【化 2 5】



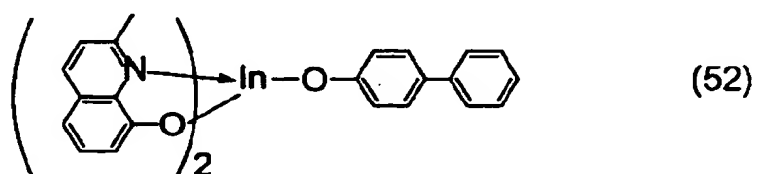
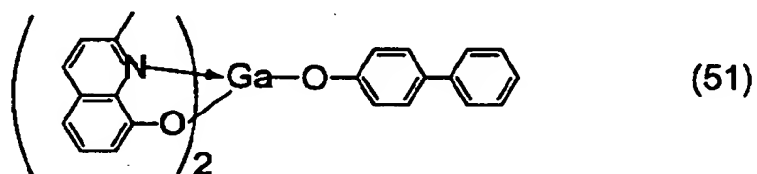
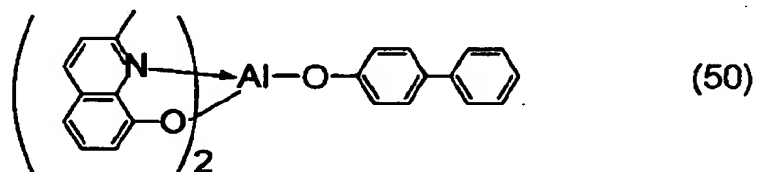
【0 0 3 6】

同様に一般式〔5〕の具体例としては次の化合物（47）～（52）が挙げられる。

【化 2 6】



【化 2 7】

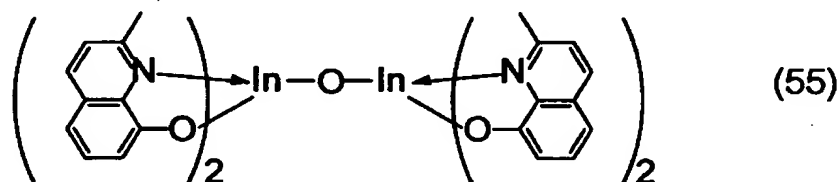
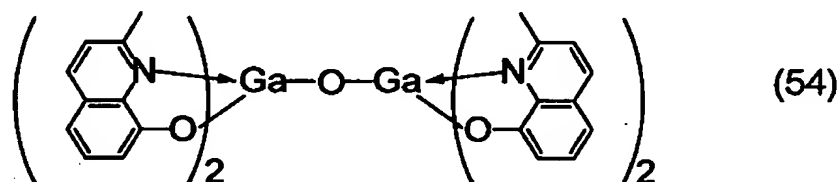
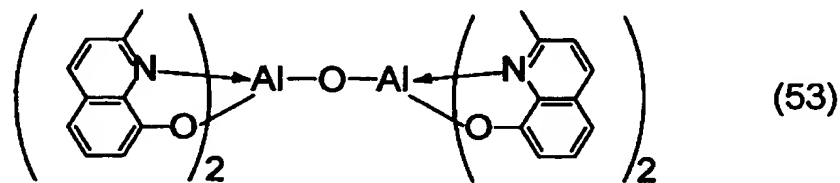




【0037】

また、一般式〔6〕の具体例としては次の化合物（53）～（55）が挙げられる。

【化28】



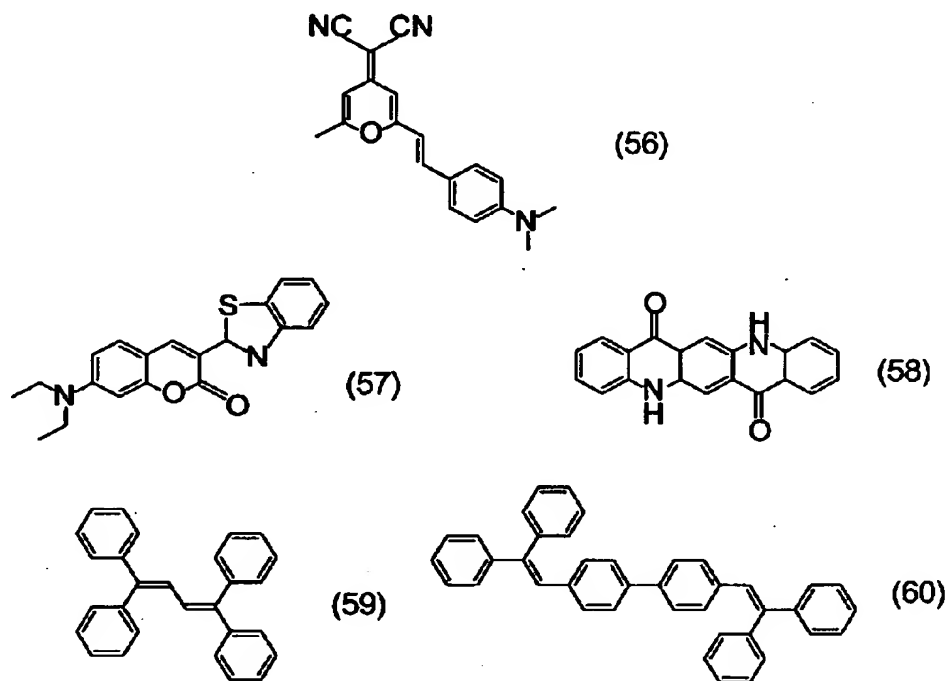
【0038】

また、複数層の有機薄膜層から発光帯域を構成する場合、本発明に用いられる一般式〔1〕で表される化合物を陽極と接する層に用い、この層と陰極の間に更に発光層を設けることができる。この場合、化合物（1）～（30）に示す本発明に用いられる化合物を組み合わせることで複数の層とすることもできる。

また、陽極に接する層と陰極の間に、化合物（37）～（55）で示す電子輸送材料に化合物（56）～（59）を混合した発光層を挿入する、あるいは化合物（60）のような電子輸送性発光材料からなる発光層を挿入することで、複数の発光層より発光帯域を形成してもよい。

【0039】

【化 2 9】



【0040】

有機薄膜EL素子の陽極は、正孔を発光帯域へ注入する役割を担うものであり、4.5 eV以上の仕事関数を有することが効果的である。用いられる陽極材料の具体例としては、酸化インジウム錫合金（ITO）、酸化錫（NE SA）、金、銀、白金、銅等が挙げられる。

また、陰極としては、電子輸送帯域または発光帯域に電子を注入する目的で、仕事関数の小さい材料が好ましい。陰極材料は特に限定されないが、具体的にはインジウム、アルミニウム、マグネシウム、マグネシウム－インジウム合金、マグネシウム－アルミニウム合金、アルミニウム－リチウム合金、アルミニウム－スカンジウム－リチウム合金、マグネシウム－銀合金等が使用できる。

【0041】

本発明の有機EL素子の各層の形成方法は特に限定されない。従来公知の真空蒸着法、スピンドーティング法等による形成方法を用いることができる。本発明の有機EL素子に用いられる、前記一般式〔1〕で示される化合物を含有する発光層、正孔輸送層、電子輸送層等の有機薄膜層は、真空蒸着法、分子線蒸着法（

M B E 法)あるいは溶媒に溶かした溶液のディッピング法、スピンコーティング法、キャストリング法、バーコート法、ロールコート法等の塗布法による公知の方法で形成することができる。

本発明の有機 E L 素子を構成する各有機層の膜厚は特に制限されないが、一般に膜厚が薄すぎるとピンホール等の欠陥が生じやすく、逆に厚すぎると高い印加電圧が必要となり効率が悪くなるため、通常は数 nm $\sim$ 1  $\mu$ m の範囲が好ましい。

#### 【0042】

##### 【実施例】

以下、本発明を実施例をもとに詳細に説明するが、本発明はその要旨を越えない限り、以下の実施例に限定されない。

##### 【合成例】 化合物(8)の合成

アルゴン置換した三角フラスコ中に 3, 3'-ジメチルナフチジン、4-(ジ-*p*-トリルビニル)ブロモベンゼン、銅粉末、炭酸カリウムを入れ、200℃で30時間攪拌した。反応終了後、トルエンで希釈して吸引ろ過して無機塩を除いた。有機相を水で一回洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥後、トルエン-リグロイン(容量比1:2)混合溶媒を用いたシリカゲルクロマトグラフィーにより分離精製し、トルエン-エタノール混合溶媒を用いた再沈澱法により4, 4'-ビス(ジ-(4-(ジ-*p*-トリルビニル)フェニルアミノ))-3, 3'-ビナフチル(8)の黄色粉末を合成した。生成物はマススペクトルにて分子イオンピーク( $m/z = 1440$ )の所在を確認し、目的化合物であることを確認した。

このようにして得られた化合物(8)を、発光層として用いた例を下記の実施例4に示す。

また、化合物(8)以外の一般式[1]で表される化合物を発光層として使用した例(実施例1~3、5~6、9~11、14~15)、正孔輸送材料との混合薄膜とし発光層として用いた例(実施例7~8)、電子輸送材料との混合薄膜とし発光層として用いた例(実施例12~13)を以下に示す。

#### 【0043】

##### (実施例1)

図 1 に示す断面構造の有機薄膜 E L 素子を以下の手順で作成した。

素子は陽極／発光層／陰極により構成されている。ガラス基板上に I T O をスパッタリングによってシート抵抗が  $20 \Omega / \square$  になるように製膜し、陽極とした。その上に発光層として、化合物 (2) を真空蒸着法にて  $40 \text{ nm}$  形成した。次に陰極としてマグネシウム－銀合金を真空蒸着法にて  $200 \text{ nm}$  形成して有機 E L 素子を作製した。この素子に直流電圧を  $5 \text{ V}$  印加したところ、 $200 \text{ cd} / \text{m}^2$  の青色発光が得られた。また、最大発光効率は  $0.51 \text{ m} / \text{W}$  であった。

【0044】

(実施例 2)

発光材料として、化合物 (6) を用いる以外は実施例 1 と同様の操作を行い有機 E L 素子を作製した。この素子に直流電圧を  $5 \text{ V}$  印加したところ、 $210 \text{ cd} / \text{m}^2$  の赤色発光が得られた。また、最大発光効率は  $0.61 \text{ m} / \text{W}$  であった。

【0045】

(実施例 3)

ガラス基板上に I T O をスパッタリングによってシート抵抗が  $20 \Omega / \square$  になるように製膜し、陽極とした。その上に化合物 (2) のクロロホルム溶液を用いたスピコート法により  $40 \text{ nm}$  の発光層を形成した。次に陰極としてマグネシウム－銀合金を真空蒸着法により  $200 \text{ nm}$  形成して有機 E L 素子を作製した。この素子に直流電圧を  $5 \text{ V}$  印加したところ、 $180 \text{ cd} / \text{m}^2$  の青色発光が得られた。また、最大発光効率は  $0.51 \text{ m} / \text{W}$  であった。

【0046】

(実施例 4)

実施例 4 に用いた素子の断面構造を図 2 に示す。素子は陽極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／陰極により構成されている。ガラス基板上に I T O をスパッタリングによってシート抵抗が  $20 \Omega / \square$  になるように製膜し、陽極とした。その上に正孔輸送層として、化合物 (33) を真空蒸着法にて  $50 \text{ nm}$  形成した。次に、発光層として、化合物 (8) を真空蒸着法にて  $40 \text{ nm}$  形成した。次に、電子輸送層として化合物 [39] を真空蒸着法にて  $20 \text{ nm}$  形成した。次に陰極としてマグネシウム－銀合金を真空蒸着法によって  $200 \text{ nm}$  形成して有機 E L

素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、13,000 cd/m<sup>2</sup>の青色発光が得られた。また、最大発光効率4.01 m/Wであった。

## 【0047】

## (実施例5)

発光材料として、化合物(17)を用いる以外は実施例4と同様の操作を行い有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、10,000 cd/m<sup>2</sup>の赤色発光が得られた。また、最大発光効率4.81 m/Wであった。

## 【0048】

## (実施例6)

正孔輸送層として化合物(31)を、電子輸送層として化合物(38)を用いる以外は実施例4と同様の操作を行い有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、13,000 cd/m<sup>2</sup>の青色発光が得られた。また、最大発光効率4.51 m/Wであった。

## 【0049】

## (実施例7)

実施例7に用いた素子の断面構造を図4に示す。素子は陽極／発光層／電子輸送層／陰極により構成されている。ガラス基板上にITOをスパッタリングによってシート抵抗が20Ω/□になるように製膜し、陽極とした。その上に発光層として化合物(33)と化合物(1)を1:10の重量比で共蒸着して作製した薄膜を50nm形成した。次いで電子輸送層として化合物(39)を真空蒸着法にて50nm形成した。

次に陰極としてマグネシウム-銀合金を200nm形成してEL素子を作製した。

この素子に直流電圧を10V印加したところ、5,000 cd/m<sup>2</sup>の青色発光が得られた。また、最大発光効率2.51 m/Wであった。

## 【0050】

## (実施例8)

化合物(1)の代わりに化合物(21)を用いる以外は実施例7と同様の操作を行い有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、 $7200\text{ cd/m}^2$ の赤色発光が得られた。また、最大発光効率は $2.41\text{ m/W}$ であった。

## 【0051】

## (実施例9)

ガラス基板上にITOをスパッタリングによってシート抵抗が $20\Omega/\square$ になるように製膜し、陽極とした。その上に発光層として化合物(2)を真空蒸着法で $80\text{ nm}$ 形成し、その上に電子輸送層として化合物(38)を真空蒸着法にて $50\text{ nm}$ 形成した。次に陰極としてマグネシウム-銀合金を $200\text{ nm}$ 形成してEL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、 $8,000\text{ cd/m}^2$ の青色発光が得られた。また、最大発光効率は $4.21\text{ m/W}$ であった。

## 【0052】

## (実施例10)

化合物(2)の代わりに化合物(18)を用いる以外は実施例9と同様の操作を行い有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、 $9,200\text{ cd/m}^2$ の赤色発光が得られた。また、最大発光効率は $2.41\text{ m/W}$ であった。

## 【0053】

## (実施例11)

化合物(2)の代わりに化合物(23)を、電子輸送層として化合物(39)を用いる以外は実施例9と同様の操作を行い有機EL素子を作製した。この素子に直流電圧を10V印加したところ、 $9,200\text{ cd/m}^2$ の赤色発光が得られた。また、最大発光効率は $2.81\text{ m/W}$ であった。

## 【0054】

## (実施例12)

実施例12に用いた素子の断面構造を図3に示す。素子は陽極/正孔輸送層/発光層/陰極により構成されている。ガラス基板上にITOをスパッタリングに

よってシート抵抗が  $20\ \Omega/\square$  になるように製膜し、陽極とした。その上に正孔輸送層として化合物(33)を真空蒸着法にて  $50\text{ nm}$  形成した。次に、発光層として化合物(41)と化合物(2)とを  $20:1$  の重量比で真空共蒸着した膜を  $50\text{ nm}$  形成した。次に陰極としてマグネシウム-銀合金を  $200\text{ nm}$  形成して EL 素子を作製した。この素子に直流電圧を  $10\text{ V}$  印加したところ、 $5,500\text{ cd/m}^2$  の青色発光が得られた。また、最大発光効率  $2.21\text{ m/W}$  であった。

## 【0055】

## (実施例 13)

発光層として、化合物(41)と化合物(14)とを  $20:1$  の重量比で真空共蒸着した  $50\text{ nm}$  の膜を用いる以外は実施例 12 と同様の操作を行い有機 EL 素子を作製した。この素子に直流電圧を  $10\text{ V}$  印加したところ、 $6,000\text{ cd/m}^2$  の青色発光が得られた。また、最大発光効率  $2.11\text{ m/W}$  であった。

## 【0056】

## (実施例 14)

ガラス基板上に ITO をスパッタリングによってシート抵抗が  $20\ \Omega/\square$  になるように製膜し、陽極とした。その上に正孔輸送層として [03] を真空蒸着法にて  $50\text{ nm}$  形成した。その上に発光層として化合物(2)を真空蒸着法にて  $40\text{ nm}$  形成し、次に陰極としてマグネシウム-銀合金を  $200\text{ nm}$  形成して EL 素子を作製した。この素子に直流電圧を  $10\text{ V}$  印加したところ、 $4,000\text{ cd/m}^2$  の青色発光が得られた。また、最大発光効率  $1.31\text{ m/W}$  であった。

## 【0057】

## (実施例 15)

正孔輸送層として化合物(31)を、発光層として化合物(4)を用いる以外は実施例 14 と同様の操作を行い有機 EL 素子を作製した。この素子に直流電圧を  $10\text{ V}$  印加したところ、 $4,100\text{ cd/m}^2$  の赤色発光が得られた。また、最大発光効率  $1.21\text{ m/W}$  であった。

## 【0058】

以上、実施例 1～15 で得られた有機ルミネッセンス素子を、初期輝度を  $10$

$0\text{ cd/m}^2$ として連続駆動させたところ、全ての素子において輝度の半減寿命は5000時間以上であった。

【0059】

【発明の効果】

以上説明したとおり、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子においては、高輝度なEL発光が得られ、また、発光特性の低下、寿命特性の低下が起こらない、高寿命なものである。

【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の一例を示す断面図である。

【図2】 本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の他の例を示す断面図である。

【図3】 本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の他の例を示す断面図である。

【図4】 本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の他の例を示す断面図である。

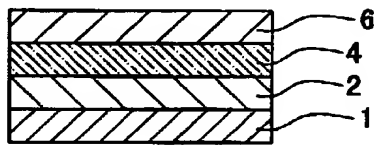
【符号の説明】

- 1 基板
- 2 陽極
- 3 正孔輸送層
- 4 発光層
- 5 電子輸送層
- 6 陰極

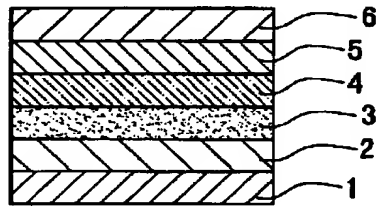


【書類名】 図面

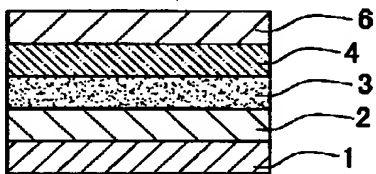
【図 1】



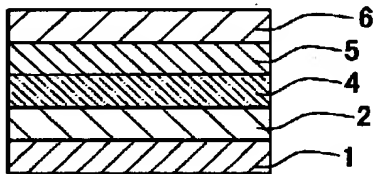
【図 2】



【図 3】



【図 4】



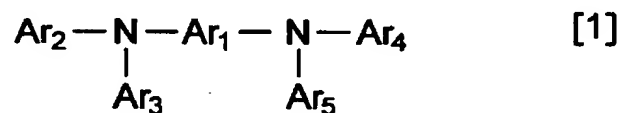
【書類名】 要約書

【要約】

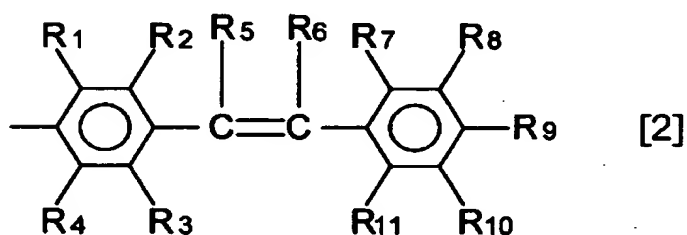
【課題】 高輝度かつ長寿命の有機 E L 素子を提供する。

【解決手段】 有機 E L 素子の構成材料として、下記一般式 [1] (式 [1] 中、 $Ar_1$  は炭素数 5 ~ 42 の置換もしくは無置換のアリーレン基であり、 $Ar_2$  ~  $Ar_5$  はそれぞれ独立に炭素数 6 ~ 20 の置換もしくは無置換のアリール基であり、 $Ar_2$  と  $Ar_3$  または  $Ar_4$  と  $Ar_5$  の 2 つの群のうち少なくとも一方は同時に下記一般式 [2] で表される基をそれぞれ少なくとも一つ有する。) で表される特定のジスチリルジフェニルアミノアリーレン化合物を用いる。

【化 1】



【化 2】



【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号	平成 11 年 特許願 第 356685 号
受付番号	59901224866
書類名	特許願
担当官	柴沼 竹子 7560
作成日	平成 12 年 1 月 4 日

<認定情報・付加情報>

【特許出願人】

【識別番号】	000004237
【住所又は居所】	東京都港区芝五丁目 7 番 1 号
【氏名又は名称】	日本電気株式会社

【代理人】

申請人

【識別番号】	100108578
【住所又は居所】	東京都新宿区高田馬場 3 丁目 23 番 3 号 ORビ ル 志賀国際特許事務所

【氏名又は名称】	高橋 詔男
----------	-------

【代理人】

【識別番号】	100064908
【住所又は居所】	東京都新宿区高田馬場 3 丁目 23 番 3 号 ORビ ル 志賀国際特許事務所

【氏名又は名称】	志賀 正武
----------	-------

【選任した代理人】

【識別番号】	100101465
【住所又は居所】	東京都新宿区高田馬場 3 丁目 23 番 3 号 ORビ ル 志賀国際特許事務所

【氏名又は名称】	青山 正和
----------	-------

【選任した代理人】

【識別番号】	100108453
【住所又は居所】	東京都新宿区高田馬場 3 丁目 23 番 3 号 ORビ ル 志賀国際特許事務所

【氏名又は名称】	村山 靖彦
----------	-------

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000004237]

1. 変更年月日 1990年 8月29日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都港区芝五丁目7番1号

氏 名 日本電気株式会社